

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
Kitahama-Yamamoto Building  
3-6, Kitahama 2-chome  
Chuo-ku  
Osaka-shi  
Osaka 541-0041  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 07 septembre 2001 (07.09.01)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference P23465-PO	
International application No. PCT/JP00/06073	International filing date (day/month/year) 06 septembre 2000 (06.09.00)

1. The following indications appeared on record concerning:		
<input checked="" type="checkbox"/> the applicant	<input checked="" type="checkbox"/> the inventor	<input type="checkbox"/> the agent <input type="checkbox"/> the common representative
Name and Address FIJII, Satoru 1-14-12, Tsukawaki Takatsuki-shi Osaka 569-1036 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:		
<input type="checkbox"/> the person	<input checked="" type="checkbox"/> the name	<input type="checkbox"/> the address <input type="checkbox"/> the nationality <input type="checkbox"/> the residence
Name and Address FUJII, Satoru 1-14-12, Tsukawaki Takatsuki-shi Osaka 569-1036 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	
3. Further observations, if necessary:		
4. A copy of this notification has been sent to:		
<input checked="" type="checkbox"/> the receiving Office	<input type="checkbox"/> the designated Offices concerned	
<input type="checkbox"/> the International Searching Authority	<input checked="" type="checkbox"/> the elected Offices concerned	
<input checked="" type="checkbox"/> the International Preliminary Examining Authority	<input type="checkbox"/> other:	

<b>The International Bureau of WIPO</b> 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Shinji IGARASHI Telephone No.: (41-22) 338.83.38
--	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing: 29 March 2001 (29.03.01)	
International application No.: PCT/JP00/06073	Applicant's or agent's file reference: P23465-PO
International filing date: 06 September 2000 (06.09.00)	Priority date: 17 September 1999 (17.09.99)
Applicant: NISHIDA, Kazufumi et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:

27 December 2000 (27.12.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  J. Zahra Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2001 年 3 月 29 日 (29.03.2001)

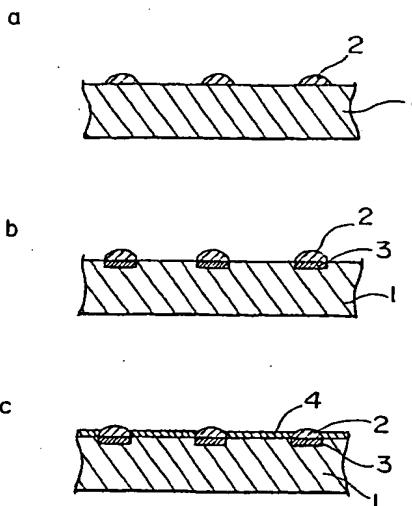
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/22513 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/10 阪府枚方市藤阪元町2-27-15 Osaka (JP). 行天久朗 (GYOTEN, Hisaaki) [JP/JP]; 〒575-0013 大阪府四條畷市田原台3-10-2 Osaka (JP). 羽藤一仁 (HATOH, Kazuhito) [JP/JP]; 〒536-0015 大阪府大阪市城東区新喜多1-2-7-2610 Osaka (JP). 小原英夫 (OHARA, Hideo) [JP/JP]; 〒576-0016 大阪府交野市星田7-67-4 Osaka (JP). 神原輝壽 (KANBARA, Teruhisa) [JP/JP]; 〒563-0021 大阪府池田市畑1-8-13 Osaka (JP). 藤井 寛 (FIJII, Satoru) [JP/JP]; 〒569-1036 大阪府高槻市塚脇1-14-12 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/06073
- (22) 国際出願日: 2000 年 9 月 6 日 (06.09.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願平11/262970 1999 年 9 月 17 日 (17.09.1999) JP  
特願平11/298926 1999 年 10 月 20 日 (20.10.1999) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府門真市大字門真1006番地 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 石井和郎 (ISHII, Kazuo); 〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜2丁目3番6号 北浜山本ビル Osaka (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および  
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西田和史 (NISHIDA, Kazufumi) [JP/JP]; 〒570-0016 大阪府守口市大日東町18-4 ハイッ西口202 Osaka (JP). 新倉順二 (NIHKURA, Junji) [JP/JP]; 〒573-0157 大
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 高分子電解質型燃料電池



(57) Abstract: A polymer electrolyte fuel cell comprises a separator including a gas channel through which oxidizing gas or fuel gas is supplied to a cell electrode. The separator consists of a metal plate, conductive film formed on the surface of the metal plate, and a diffused conductor layer between the metal plate and the conductive film. The fuel cell provides stable output for a long period while preventing the metal plate from corrosion or dissolution.

[続葉有]

WO 01/22513 A1



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06073

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01B8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01B8/10, C23C14/58

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JOIS  
DIALOG (WPI/L)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP, 11-162479, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 18 June, 1999 (18.06.99), Claims; Par. Nos. [0001] to [0031] (Family: none)	11 1,3-4,6-10,12 5
X Y A	JP, 11-219713, A (Nisshin Steel Co., Ltd.), 10 August, 1999 (10.08.99), Claims; Par. Nos. [0001] to [0023] (Family: none)	11 1,3-4,6-10,12 5
Y A	JP, 9-298064, A (Fuji Electric Co., Ltd.), 18 November, 1997 (18.11.97), Claims; Par. Nos. [0001] to [0020], [0024]; Figs. 1, 4 to 7 (Family: none)	1-2,12 5
Y	JP, 5-25635, A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), 02 February, 1993 (02.02.93), Par. Nos. [0002] to [0028]; Fig. 1 (Family: none)	1,3-4,6-10,12
Y	JP, 5-25636, A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), 02 February, 1993 (02.02.93), Par. Nos. [0002] to [0030]; Fig. 1 (Family: none)	1,3-4,6-10,12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
05 December, 2000 (05.12.00)

Date of mailing of the international search report  
12 December, 2000 (12.12.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06073

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 10-237643, A (Sumitomo Osaka Cement Co., Ltd.), 08 September, 1998 (08.09.98), Par. Nos. [0002] to [0025] (Family: none)	1-2, 12
Y	JP, 8-311651, A (Nisshin Steel Co., Ltd.), 26 November, 1996 (26.11.96), Par. Nos. [0002] to [0019] (Family: none)	9
Y	JP, 10-55813, A (AISIN SEIKI CO., LTD.), 24 February, 1998 (24.02.98), Par. Nos. [0001] to [0015]; Figs. 1 to 6 (Family: none)	12
EA	JP, 2000-323151, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 24 November, 2000 (24.11.00) (Family: none)	5



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

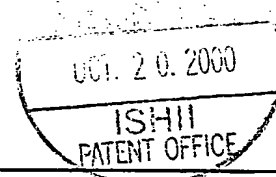
NOTIFICATION OF RECEIPT OF  
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
 Kitahama-Yamamoto Building  
 3-6, Kitahama 2-chome  
 Chuo-ku  
 Osaka-shi  
 Osaka 541-0041  
 JAPON



Date of mailing (day/month/year) 02 October 2000 (02.10.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference P23465-PO	International application No. PCT/JP00/06073

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. (for all designated States except US)  
 NISHIDA, Kazufumi et al (for US)

International filing date : 06 September 2000 (06.09.00)  
 Priority date(s) claimed : 17 September 1999 (17.09.99)  
 20 October 1999 (20.10.99)

Date of receipt of the record copy  
 by the International Bureau : 22 September 2000 (22.09.00)

List of designated Offices :

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
 National : CN, JP, KR, US

## ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
- ☒ confirmation of precautionary designations
- ☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer:  Shinji IGARASHI
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
 Kitahama-Yamamoto Building  
 3-6, Kitahama 2-chome  
 Chuo-ku  
 Osaka-shi  
 Osaka 541-0041  
 JAPON

NOTIFICATION CONCERNING  
 SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
 OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

Date of mailing (day/month/year) 08 November 2000 (08.11.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference P23465-PO	
International application No. PCT/JP00/06073	International filing date (day/month/year) 06 September 2000 (06.09.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
17 Sept 1999 (17.09.99)	11/262970	JP	27 Octo 2000 (27.10.00)
20 Octo 1999 (20.10.99)	11/298926	JP	27 Octo 2000 (27.10.00)

The International Bureau of WIPO  
 34, chemin des Colombettes  
 1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

S. Mandallaz

Telephone No. (41-22) 338.83.38



## PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF THE RECORDING  
OF A CHANGE(PCT Rule 92bis.1 and  
Administrative Instructions, Section 422)

To:

ISHII, Kazuo  
 Kitahama-Yamamoto Building  
 3-6, Kitahama 2-chome  
 Chuo-ku  
 Osaka-shi  
 Osaka 541-0041  
 JAPON

Date of mailing (day/month/year) 07 September 2001 (07.09.01)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference P23465-PO	
International application No. PCT/JP00/06073	International filing date (day/month/year) 06 September 2000 (06.09.00)

## 1. The following indications appeared on record concerning:

☒ the applicant ☒ the inventor ☐ the agent ☐ the common representative

Name and Address FIJII, Satoru 1-14-12, Tsukawaki Takatsuki-shi Osaka 569-1036 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

## 2. The International Bureau hereby notifies the applicant that the following change has been recorded concerning:


☐ the person ☒ the name ☐ the address ☐ the nationality ☐ the residence

Name and Address FUJII, Satoru 1-14-12, Tsukawaki Takatsuki-shi Osaka 569-1036 Japan	State of Nationality JP	State of Residence JP
	Telephone No.	
	Facsimile No.	
	Teleprinter No.	

## 3. Further observations, if necessary:

## 4. A copy of this notification has been sent to:

☒ the receiving Office ☐ the designated Offices concerned  
☐ the International Searching Authority ☒ the elected Offices concerned  
☒ the International Preliminary Examining Authority ☐ other:

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer  Shinji IGARASHI Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--



## PATENT COOPERATION TREATY

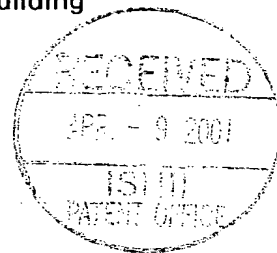
PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
Kitahama-Yamamoto Building  
3-6, Kitahama 2-chome  
Chuo-ku  
Osaka-shi  
Osaka 541-0041  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 29 March 2001 (29.03.01)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference P23465-PO			
International application No. PCT/JP00/06073	International filing date (day/month/year) 06 September 2000 (06.09.00)	Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)	
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
CN,EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 29 March 2001 (29.03.01) under No. WO 01/22513

**REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)**

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

**REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))**

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  J. Zahra  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---





## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INFORMATION CONCERNING ELECTED  
OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
 Kitahama-Yamamoto Building  
 3-6, Kitahama 2-chome  
 Chuo-ku  
 Osaka-shi  
 Osaka 541-0041  
 JAPON



Date of mailing (day/month/year) 29 March 2001 (29.03.01)		IMPORTANT INFORMATION	
Applicant's or agent's file reference P23465-PO			
International application No. PCT/JP00/06073	International filing date (day/month/year) 06 September 2000 (06.09.00)	Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)	
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al			

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
 National : CN, JP, KR, US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

None

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" **before the expiration of 30 months from the priority date** before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 39(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 36(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed until 31 months from the priority date for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  J. Zahra  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--



47  
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference P23465-PO	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/06073	International filing date (day/month/year) 06 September 2000 (06.09.00)	Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01M 8/02, 8/10		
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>6</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.</p>
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>

Date of submission of the demand 27 December 2000 (27.12.00)	Date of completion of this report 01 October 2001 (01.10.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
PCT/JP00/06073

## I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages 1-23, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
pages 6, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages 1,5,7,9,10,12, filed with the letter of 18 June 2001 (18.06.2001)
- ☒ the drawings:  
pages 1/6-6/6, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. 2-4,8,11
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.  
JP 00/06073

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

## 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1, 5-7, 9, 10, 12	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	5, 12	YES
	Claims	1, 6, 7, 9, 10	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1, 5-7, 9, 10, 12	YES
	Claims		NO

## 2. Citations and explanations

Document 1: JP, 11-219713, A (Nisshin Steel Co., Ltd.), August 10, 1999 (10.08.99), claims; [0001] to [0023]

Document 2: JP, 11-162479, A (Asahi Glass Co., Ltd.), June 18, 1999 (18.06.99), claims; [0001] to [0031]

Document 3: JP, 9-298064, A (Fuji Electric Co., Ltd.), November 18, 1997 (18.11.97), claims; [0001] to [0020]; [0024]; Fig. 1 and Fig. 4 to 7

Document 4: JP, 10-237643, A (Sumitomo Osaka Cement Co., Ltd.), September 8, 1998 (08.09.98), [0002] to [0025]

Document 5: JP, 5-25635, A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), February 2, 1993 (02.02.93), [0002] to [0028]; Fig. 1

Document 6: JP, 5-25636, A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), February 2, 1993 (02.02.93), [0002] to [0030]; Fig. 1

The invention set forth in Claim 1 does not involve an inventive step in the light of Documents 1, 2, 5 and 6 cited in the international search report or Documents 3 and 4 cited in the international search report. The feature disclosed in Documents 1 and 2 wherein the surface

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



of a metal plate used as a conductive separator plate is partially or entirely coated with an oxidation-resistant conductive ceramic film and the feature disclosed in Documents 5 and 6 wherein the surface of a metal plate is coated with an oxidation-resistant ceramic film belong to closely related technical fields. Therefore, it would be easy for a person skilled in the art to apply the coating techniques disclosed in Documents 5 and 6 wherein the coating using a film is provided with a layer in which a coating material is dispersed on the interfaces between the metal plate and the oxidation-resistant film to the polymer electrolyte fuel cells disclosed in Documents 1 and 2 which are provided with a conductive separator plate wherein the surface of the metal plate is partially or entirely coated with oxidation-resistant conductive ceramic film. Moreover, the feature wherein the surface of the metal plate of a conductive separator is coated with a film comprising a noble metal disclosed in Document 3 and the feature wherein a metal plate is coated with a film comprising a noble metal disclosed in Document 4 belong to closely related technical fields. Therefore, it would be easy for a person skilled in the art to apply the coating technique disclosed in Document 4 wherein the coating using a film is provided with a layer in which a coating material is dispersed on the interfaces between the metal plate and the film comprising a noble metal to the polymer electrolyte fuel cell disclosed in Document 3 which is provided with a conductive separator plate wherein the surface of the metal plate of a conductive separator is coated with a film comprising a noble metal.

The invention set forth in Claims 6, 7, 9 and 10 does not involve an inventive step in the light of Documents 1, 5 and 6. The feature disclosed in Document 1 wherein the surface of a metal plate used as a conductive separator

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

plate is coated with an oxidation-resistant conductive ceramic film and the feature disclosed in Documents 5 and 6 wherein the surface of a metal plate is coated with an oxidation-resistant ceramic film belong to closely related technical fields. Therefore, it would be easy for a person skilled in the art to apply the coating techniques disclosed in Documents 5 and 6 wherein the coating using a film is provided with an intermediate layer comprising a metal element which forms a coating on the interfaces between the metal plate and the oxidation-resistant ceramic film, the composition ratio of the film-forming element changes from said intermediate layer to the coating surface, and a metal element dispersion layer is provided on the interface between the intermediate layer and the metal plate to the polymer electrolyte fuel cell disclosed in Document 1 which is provided with a conductive separator plate wherein the surface of the metal plate of a conductive separator is coated with a film comprising a noble metal.

The invention set forth in Claim 5 is novel and involves an inventive step in relation to the documents cited in the international search report. For example, although Document 2 discloses the feature wherein the surface facing the anode or the cathode of the metal plate used as a conductive separator in the polymer electrolyte fuel cell is coated with a conductive film in an island structure, it does not disclose or suggest the feature wherein an anti-corrosive film is formed on those sections which are not coated with the conductive film. None of the documents cited in the international search report discloses or suggests a metal plate used as a conductive separator in a polymer electrolyte fuel cell wherein the surface facing the anode or the cathode is coated with a conductive film in an island structure and an anti-

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

corrosive film is formed on those sections which are not coated with the conductive film.

The invention set forth in Claim 12 is novel and involves an inventive step in relation to the documents cited in the international search report. None of the documents cited in the international search report discloses or suggests a conductive separator of a polymer electrolyte fuel cell wherein, using an elastic insulation sheet which operates as a gasket, a gas flow path is formed in the surface of the metal plate which works together with a groove or a rib in the metal plate to guide gas to the fluid inlet opening on the supply side and to the fluid discharge opening on the discharge side.

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

REC'D 12 OCT 2001

WIPO

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
(PCT36条及びPCT規則70)

出願人又は代理人 P23465-PO の書類記号	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/06073	国際出願日 (日.月.年) 06.09.00	優先日 (日.月.年) 17.09.99
国際特許分類(IPC) Int. Cl <sup>7</sup> H01M 8/02, H01M 8/10		
出願人(氏名又は名称) 松下電器産業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。

☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 2 ページである。

3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 27.12.00	国際予備審査報告を作成した日 01.10.01	
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 小川 進	4X 8414
電話番号 03-3581-1101 内線 3477		

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1~23 ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 6 項、 出願時に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
請求の範囲 第 1, 5, 7, 9, 10, 12 項、 18.06.01 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 図面 第 1/6~6/6 ページ/図、 出願時に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 2~4, 8, 11 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならない、本報告に添付する。)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	1, 5 ~ 7, 9, 10, 12	有
	請求の範囲		無
進歩性 (IS)	請求の範囲	5, 12	有
	請求の範囲	1, 6, 7, 9, 10	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	1, 5 ~ 7, 9, 10, 12	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

- 文献1: JP, 11-219713, A (日新製鋼株式会社), 10. 8月. 1999 (10. 08. 99), 特許請求の範囲、及び、【0001】 ~ 【0023】  
 文献2: JP, 11-162479, A (旭硝子株式会社), 18. 6月. 1999 (18. 06. 99), 特許請求の範囲、及び、【0001】 ~ 【0031】  
 文献3: JP, 9-298064, A (富士電機株式会社), 18. 11月. 1997 (18. 11. 97), 特許請求の範囲、【0001】 ~ 【0020】、【0024】、【図1】、及び、【図4】 ~ 【図7】  
 文献4: JP, 10-237643, A (住友大阪セメント株式会社), 8. 9月. 1998 (08. 09. 98), 【0002】 ~ 【0025】  
 文献5: JP, 5-25635, A (住友金属工業株式会社), 2. 2月. 1993 (02. 02. 93), 【0002】 ~ 【0028】、及び、【図1】  
 文献6: JP, 5-25636, A (住友金属工業株式会社), 2. 2月. 1993 (02. 02. 93), 【0002】 ~ 【0030】、及び、【図1】

請求の範囲1記載の発明は、国際調査報告で引用した文献1~2と5~6、あるいは、国際調査報告で引用した文献3と4により進歩性を有しない。文献1~2記載の、導電性セパレータ板用の金属板の表面を部分的または全面的に耐酸化性の導電性セラミックス被膜で被覆する技術と、文献5~6に記載の、金属板の表面を耐酸化性のセラミックス被膜で被覆する技術とは、互いに密接に関連した技術分野に属するものである。金属板の表面を部分的または全面的に耐酸化性の導電性セラミックス被膜で被覆してなる導電性セパレータ板を具備する、文献1~2に記載の高分子電解質型燃料電池において、該被膜での被覆に、金属板と耐酸化性の被膜との界面部分に被膜材料の拡散した層を設けるといふ、文献5~6に記載の被覆技術を適用することは、当業者であれば容易である。また、文献3記載の、導電性セパレータ板用の金属板の表面を貴金属からなる被膜で被覆する技術と、文献4に記載の、金属板の表面を貴金属からなる被膜で被覆する技術とは、互いに密接に関連した技術分野に属するものである。金属板の表面を耐酸化性の貴金属からなる導電性被膜で被覆してなる導電性セパレータ板を具備する、文献3に記載の高分子電解質型燃料電池において、該被膜での被覆に、金属板と貴金属からなる被膜との界面部分に被膜材料の拡散した層を設けるといふ、文献4に記載の被覆技術を適用することは、当業者であれば容易である。

請求の範囲6, 7, 9, 10記載の発明は、文献1と5~6により進歩性を有しない。文献1記載の、導電性セパレータ板用の金属板の表面を耐酸化性の導電性セラミックス被膜で被覆する技術と、文献5~6に記載の、金属板の表面を耐酸化性のセラ

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

補充欄 (いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること)

## 第 V.2. 欄の続き

ミックス被膜で被覆する技術とは、互いに密接に関連した技術分野に属するものであるので、金属板の表面を耐酸化性の導電性セラミックス被膜で被覆してなる導電性セパレータ板を具備する、文献1に記載の高分子電解質型燃料電池において、該被膜での被覆に、金属板と耐酸化性のセラミックス被膜との界面部分に被膜を構成する金属元素からなる中間層を設け、その中間層から被膜表面にかけて被膜形成元素の構成比を変化させ、また、中間層と金属板との界面に金属元素拡散層を設けるという、文献5～6に記載の被覆技術を適用することは、当業者であれば容易である。

請求の範囲5記載の発明は、国際調査報告で引用した文献に対して、新規性・進歩性を有する。例えば文献2には、高分子電解質型燃料電池の導電性セパレータ用金属板におけるアノードまたはカソードに面する表面を、導電性被膜により島状に被覆することは記載されているものの、導電性被膜により被覆されていない部分には耐食性被膜を形成するということは記載も示唆もされていない等、国際調査報告で引用したいずれの文献にも、高分子電解質型燃料電池の導電性セパレータ用金属板におけるアノードまたはカソードに面する表面を、導電性被膜により島状に被覆し、導電性被膜により被覆されていない部分には耐食性被膜を形成することは記載も示唆もされていない。

請求の範囲12記載の発明は、国際調査報告で引用した文献に対して、新規性・進歩性を有する。国際調査報告で引用したいずれの文献にも、高分子電解質型燃料電池用の導電性セパレータにおいて、ガasketとして働く弾性を有する絶縁性シートによって、金属板の溝またはリブと協同してガスをその供給側の流体導入用開口と排出側の流体排出用開口に導くガス流路を金属板表面に形成することは記載も示唆もされていない。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 請 求 の 範 囲

1. (補正後) 高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソード、前記アノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側導電性セパレータ板、および前記カソードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側導電性セパレータ板を具備し、前記アノード側およびカソード側導電性セパレータ板は、金属板およびそのアノードまたはカソードに面する表面を部分的にまたは全面を被覆する耐酸化性の導電性被膜からなり、前記金属板と導電性被膜との界面部分に前記導電性被膜材料の拡散した拡散層を有し、前記導電性被膜が、Ti、Cr、Zr、Al、TaおよびWからなる群より選ばれる元素の窒化物、炭化物、または貴金属からなる高分子電解質型燃料電池。

2. (削除)

3. (削除)

4. (削除)

5. (補正後) 前記金属板のアノードまたはカソードに面する表面が導電性被膜により島状に被覆され、前記金属板の導電性被膜が形成されていない部分には、耐食性被膜が形成されている請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池。

6. 高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソード、前記アノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側導電性セパレータ板、および前記カソードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側導電性セパレータ板を具備し、前記アノード側およびカソード側導電性セパレータ板は、金属板およびそのアノードまたはカソードに面する表面を被覆する耐酸化性の導電性化合物被膜からなり、前記金属板と導電性化合物被膜との界面部分に前記導電性化合物を

THIS PAGE BLANK (USPTO)



構成する金属元素からなる中間層を有する高分子電解質型燃料電池。

7. (補正後) 前記導電性化合物が、Ti、Cr、Zr、Al、TaおよびWからなる群より選ばれる元素の窒化物または炭化物である請求の範囲第6項記載の高分子電解質型燃料電池。

8. (削除)

9. (補正後) 前記導電性化合物被膜は、前記中間層との界面から導電性化合物被膜の表面にかけて導電性化合物被膜を形成する元素の構成比が変化している請求の範囲第6項記載の高分子電解質型燃料電池。

10. (補正後) 前記中間層と金属板との界面に、前記中間層の金属元素が拡散した拡散層を有する請求の範囲第6項記載の高分子電解質型燃料電池。

11. (削除)

12. (補正後) 前記アノード側導電性セパレータ板が、燃料ガスを導くための溝またはリブを前記アノードに面する表面に有する金属板と、前記溝またはリブと協同して燃料ガスをその供給側の流体導入用開口から排出側の流体排出用開口に導くガス流路を前記金属板表面に形成し、かつ燃料ガスが前記ガス流路から外部に漏れるのを防止するガスケットとして働く弾性を有する絶縁性シートからなり、前記カソード側導電性セパレータ板が、酸化剤ガスを導くための溝またはリブを前記カソードに面する表面に有する金属板と、前記溝またはリブと協同して酸化剤ガスをその供給側の流体導入用開口から排出側の流体排出用開口に導くガス流路を前記金属板表面に形成し、かつ酸化剤ガスが前記ガス流路から外部に漏れるのを防止するガスケットとして働く弾性を有する絶縁性シートからなる請求の範囲第1または6項記載の高分子電解質型燃料電池。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## 国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 P 2 3 4 6 5 - P O	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 0 0 / 0 6 0 7 3	国際出願日 (日.月.年) 0 6 . 0 9 . 0 0	優先日 (日.月.年) 1 7 . 0 9 . 9 9
出願人 (氏名又は名称) 松下電器産業株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (PCT18条) の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条 (PCT規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
第7 a)~c) 図とする。 ☒ 出願人が示したとおりである。

☐ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01B 8/02, H01B8/10

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01B 8/02, H01B8/10, C23C14/58

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS

DIALOG (WPI/L)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	J P, 11-162479, A (旭硝子株式会社), 18. 6 月. 1999 (18. 06. 99), 特許請求の範囲、及び、【00 01】～【0031】 (ファミリーなし)	11 1, 3～4, 6 ～10, 12 5
X Y A	J P, 11-219713, A (日新製鋼株式会社), 10. 8 月. 1999 (10. 08. 99), 特許請求の範囲、及び、【00 01】～【0023】 (ファミリーなし)	11 1, 3～4, 6 ～10, 12 5

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技术水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05. 12. 00

国際調査報告の発送日

12.12.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進

4X

8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## C (続き) . 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	J P, 9-298064, A (富士電機株式会社), 18. 11 月. 1997 (18. 11. 97), 特許請求の範囲、【0001】～ 【0020】、【0024】、【図1】、及び、【図4】～【図7】 (ファ ミリーなし)	1～2, 12 5
Y	J P, 5-25635, A (住友金属工業株式会社), 2. 2 月. 1993 (02. 02. 93), 【0002】～【0028】、及び、 【図1】 (ファミリーなし)	1, 3～4, 6 ～10, 12
Y	J P, 5-25636, A (住友金属工業株式会社), 2. 2 月. 1993 (02. 02. 93), 【0002】～【0030】、及び、 【図1】 (ファミリーなし)	1, 3～4, 6 ～10, 12
Y	J P, 10-237643, A (住友大阪セメント株式会社), 8. 9月. 1998 (08. 09. 98), 【0002】～【0025】 (ファミリーなし)	1～2, 12
Y	J P, 8-311651, A (日新製鋼株式会社), 26. 11 月. 1996 (26. 11. 96), 【0002】～【0019】 (ファミ リーなし)	9
Y	J P, 10-55813, A (アイシン精機株式会社), 24. 2月. 1998 (24. 02. 98), 【0001】～【0015】、及 び、【図1】～【図6】 (ファミリーなし)	12
EA	J P, 2000-323151, A (松下電器産業株式会社), 24. 11月. 2000 (24. 11. 00). (ファミリーなし)	5

THIS PAGE BLANK (USPTO)



(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2001年3月29日 (29.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/22513 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: H01M 8/02, 8/10
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/06073
- (22) 国際出願日: 2000年9月6日 (06.09.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願平11/262970 1999年9月17日 (17.09.1999) JP  
特願平11/298926 1999年10月20日 (20.10.1999) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府門真市大字門真1006番地 Osaka (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西田和史 (NISHIDA, Kazufumi) [JP/JP]; 〒570-0016 大阪府守口市大日東町18-4 ハイッ西口202 Osaka (JP).  
新倉順二 (NIIKURA, Junji) [JP/JP]; 〒573-0157 大

阪府枚方市藤阪元町2-27-15 Osaka (JP). 行天久朗 (GYOTEN, Hisaaki) [JP/JP]; 〒575-0013 大阪府四條畷市田原台3-10-2 Osaka (JP). 羽藤一仁 (HATOH, Kazuhito) [JP/JP]; 〒536-0015 大阪府大阪市城東区新喜多1-2-7-2610 Osaka (JP). 小原英夫 (OHARA, Hideo) [JP/JP]; 〒576-0016 大阪府交野市星田7-67-4 Osaka (JP). 神原輝壽 (KANBARA, Teruhisa) [JP/JP]; 〒563-0021 大阪府池田市畑1-8-13 Osaka (JP). 藤井覚 (FIJII, Satoru) [JP/JP]; 〒569-1036 大阪府高槻市塚脇1-14-12 Osaka (JP).

(74) 代理人: 石井和郎 (ISHII, Kazuo); 〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜2丁目3番6号 北浜山本ビル Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

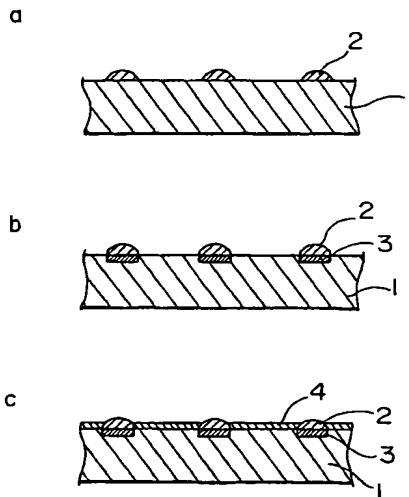
添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 高分子電解質型燃料電池



(57) Abstract: A polymer electrolyte fuel cell comprises a separator including a gas channel through which oxidizing gas or fuel gas is supplied to a cell electrode. The separator consists of a metal plate, conductive film formed on the surface of the metal plate, and a diffused conductor layer between the metal plate and the conductive film. The fuel cell provides stable output for a long period while preventing the metal plate from corrosion or dissolution.

[続葉有]

WO 01/22513 A1



---

(57) 要約:

高分子電解質型燃料電池の電極に酸化剤ガスまたは燃料ガスを供給するガス流路を有するセパレータ板が、金属板とその表面に形成した導電性被膜からなり、金属板と前記導電性被膜との間に、導電性被膜材料の拡散した拡散層を有する。長期間使用しても金属板の腐食や溶解が起こらず、出力の安定した燃料電池を与える。

## 明 細 書

## 高分子電解質型燃料電池

## 技術分野

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源、家庭内コージェネレーションシステム等に使用される固体高分子電解質型燃料電池、特にその導電性セパレータ板の改良に関する。

## 背景技術

固体高分子電解質を用いた燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと空気など酸素を含有する酸化剤ガスとを電気化学的に反応させることにより、電力と熱とを同時に発生させるものである。この燃料電池は、基本的には、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜、および高分子電解質膜の両面に形成された一对の電極、すなわちアノードとカソードから構成される。前記の電極は、通常、白金族金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とし、高分子電解質膜の表面に形成される触媒層、およびこの触媒層の外面に形成される、通気性と電子伝導性を併せ持つ拡散層からなる。

さらに、電極に供給される燃料ガスおよび酸化剤ガスが外にリークしたり、二種類のガスが互いに混合しないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスシール材やガスケットが配置される。これらのシール材やガスケットは、電極及び高分子電解質膜と一体化してあらかじめ組み立てられる。これをMEA（電極電解質膜接合体）と呼ぶ。MEAの外側には、これを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電氣的に直列に、場合によっては並列に、接続するための導電性のセパレータ板が配置される。セパレータ板のMEAと接触する部分には、

電極面に反応ガスを供給し、生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路が形成される。ガス流路は、セパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータ板の表面に溝を設けてガス流路とする方式が一般的である。

これらの溝に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給するためは、燃料ガスおよび酸化剤ガスをそれぞれ供給する配管を、使用するセパレータ板の枚数に分岐し、その分岐先を直接セパレータ板の溝につなぐ配管治具が必要となる。この治具をマニホールドと呼び、上記のような燃料ガスおよび酸化剤ガスの供給配管から直接つなぎ込むタイプを外部マニホールドと呼ぶ。このマニホールドには、構造をより簡単にした内部マニホールドと呼ぶ形式のものがある。内部マニホールドとは、ガス流路を形成したセパレータ板に、貫通した孔を設け、ガス流路の出入り口をこの孔まで通し、この孔から直接燃料ガスおよび酸化剤ガスをガス流路に供給するものである。

燃料電池は、運転中に発熱するので、電池を良好な温度状態に維持するために、冷却水等で冷却する必要がある。通常、1～3セル毎に、冷却水を流す冷却部が設けられる。冷却部をセパレータ板とセパレータ板との間に挿入する形式と、セパレータ板の背面に冷却水流路を設けて冷却部とする形式とがあり、後者が多く利用される。これらのMEAとセパレータ板および冷却部を交互に重ねて10～200セル積層し、その積層体を集電板と絶縁板を介して端板で挟み、締結ボルトで両端から固定するのが一般的な積層電池の構造である。

このような高分子電解質型燃料電池では、セパレータ板は導電性が高く、かつ燃料ガスおよび酸化剤ガスに対して気密性が高く、さらに水素／酸素を酸化還元する際の反応に対して高い耐食性を持つ必要がある。このような理由から、従来のセパレータ板は、通常グラッシーカーボン

や膨張黒鉛などのカーボン材料で構成され、ガス流路もその表面の切削や、膨張黒鉛の場合は型による成型により、作製されていた。

従来のカーボン板を切削する方法では、カーボン板の材料コストと共に、これを切削するためのコストを引き下げることが困難であった。また、膨張黒鉛を用いた方法も材料コストが高く、これが実用化のための障害と考えられている。

近年、従来より使用されたカーボン材料に代えて、ステンレス鋼などの金属板を用いる試みが行われている。

しかし、上述の金属板を用いる方法では、金属板が高温においてpH 2～3程度の酸化性の雰囲気に曝されるため、長期間使用すると、金属板の腐食や溶解が起こる。金属板が腐食すると、腐食部分の電気抵抗が増大し、電池の出力が低下する。また、金属板が溶解すると、溶解した金属イオンが高分子電解質膜に拡散し、これが高分子電解質膜のイオン交換サイトにトラップされ、結果的に高分子電解質自身のイオン伝導性が低下する。これらの原因により、金属板をそのままセパレータ板に使用し、電池を長期間運転すると、発電効率が次第に低下するという問題があった。

本発明は、燃料電池に使用されるセパレータ板を改良して、加工の容易な金属を素材とし、そのガスに露出する表面を酸性雰囲気に曝されても化学的不活性を維持するものとして、腐食と溶解が抑制されかつ良好な導電性を有するセパレータ板を提供することを目的とする。

## 発明の開示

本発明の高分子電解質型燃料電池は、高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソード、前記アノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側導電性セパレータ板、および前記カソ

ードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側導電性セパレータ板を具備し、前記アノード側およびカソード側導電性セパレータ板は、金属およびそのアノードまたはカソードに面する表面を、特定の間層を介して、被覆する耐酸化性の導電性被膜からなることを特徴とする。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は本発明の実施例における燃料電池の要部を模式的に表す断面図である。

図 2 は同燃料電池のアノード側セパレータ板の平面図である。

図 3 は同燃料電池のカソード側セパレータ板の平面図である。

図 4 はアノード側セパレータ板を構成する金属板の平面図である。

図 5 はアノード側セパレータ板を構成する絶縁性シートの平面図である。

図 6 は本発明の実施例および比較例の燃料電池の出力特性を示した図である。

図 7 は本発明の他の実施例におけるセパレータ板の金属基板の表面処理のプロセスを示す断面図である。

図 8 は本発明のさらに他の実施例における金属基板の表面処理のプロセスを示す断面図である。

図 9 は本発明の他の実施例における金属基板の表面処理のプロセスを示す断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明のセパレータ板は、基本的には、表面が特定の間層を介して、耐酸化性の導電性被膜で被覆された金属板から構成される。そして、こ

の金属板は、プレス加工などによりガス流路を形成するためのリブないし溝を有している。

本発明の好ましいセパレータ板は、燃料ガスまたは酸化剤ガスを導くためのリブないし溝を電極に面する表面に有する前記の加工された金属板と、ガスケットとして働く弾性を有する絶縁性のシートとの組み合わせから構成される。前記の絶縁性シートは、前記金属板のリブないし溝と協同して燃料ガスまたは酸化剤ガスをその供給側から排出側に導くガス流路を形成し、かつ燃料ガスまたは酸化剤ガスが前記ガス流路から外部に漏れるのを防止するガスケットとして働く。

導電性被膜を形成する金属板としては、ステンレス鋼、アルミニウムなどの導電性に優れ、かつプレス加工などによりガス流通路となるリブないし溝を容易に形成できる金属板が用いられる。

前記金属板の表面を被覆する耐酸化性の導電性被膜は、好ましい態様においては、Au、Pt、Rh、Pdなどの貴金属からなる。他の好ましい態様においては、導電性被膜は、水素、窒素、炭素、および硼素からなる群より選択される少なくとも一種の非金属を遷移金属にドーブした侵入型化合物（侵入型合金とも呼ばれることもある。）からなる。侵入型化合物のなかでもTiN、ZrN、TiAlN、TiZrN、Ta<sub>2</sub>N、WN、CrNなどの窒化物、およびTiC、ZrC、WC、TaCなどの炭化物が特に好ましい。これらの導電性被膜の場合、当該被膜と金属板との界面に形成される中間層は、前記導電性被膜材料が金属板に拡散した拡散層である。

前記の貴金属からなる被膜を形成するには、rfスパッタ法を用いるのが好ましい。しかし、化学蒸着法やめっき法などによって形成することもできる。前記窒化物よりなる導電性被膜を形成する方法としては、窒化物を構成する金属をターゲットとして窒素ガスを含む雰囲気下での

スパッタ法が、また炭化物よりなる導電性被膜を形成する方法としては、当該炭化物をターゲットとしたスパッタ法がそれぞれ好ましい。これらの導電性被膜を形成した後、前記の拡散層を形成するには、非酸化性雰囲気、具体的にはアルゴン、窒素または真空（0.1 Pa 以下）雰囲気下において250～400℃で5分～2時間熱処理するのが好ましい。

上記の導電性被膜および拡散層は、他の態様においては、金属板の表面を島状に被覆している。この場合、金属板の導電性被膜が形成されていない部分には、耐食性被膜が形成されていることが好ましい。この島状に被覆する部分の個々の面積は、少なくとも50オングストローム×50オングストロームであり、その被覆部分全体の占める割合は、面積比で30%以上であることが好ましい。

前記金属板の表面を被覆する耐酸化性の導電性被膜は、他の好ましい態様においては、上に例示したような化合物で、Ti、Cr、Zr、Al、TaおよびWからなる群より選ばれる元素の窒化物または炭化物で構成される。これらの導電性被膜の場合、当該被膜と金属板との界面に形成される中間層は、導電性化合物被膜を構成する金属元素で構成される。これらの導電性化合物被膜を形成するには、まず金属板の表面に導電性化合物を構成する金属元素からなる中間層を形成し、その上に導電性化合物被膜を形成する。この中間層により金属基板と導電性被膜の密着力が向上するとともに、ピンホールを防止することができる。これらの中間層および導電性化合物被膜を形成する方法は、上記のようなrfスパッタ法が好ましい。また、導電性被膜中の金属元素の含有率が、中間層との界面から導電性被膜の表面方向に向かうに従って減少するように、傾斜を設けると、金属セパレータ板と導電性被膜の密着力を向上させるとともに、被膜の残留応力を緩和し、さらにピンホールを防止することができる。窒化物からなる導電性被膜中の金属原子の含有率を制御



する方法としては、後述の実施例に示すように、窒素を含む雰囲気中で金属をスパッタして当該金属の窒化物を生成させる際、スパッタガス中の窒素の流量比を制御する方法、または r f パワーを制御する方法を用いるのが好ましい。また、炭化物からなる導電性被膜中の金属原子の含有率を制御する方法としては、有機金属 C V D 法により金属炭化物を生成させる際、反応ガスを制御する方法が用いられる。

前記のような中間層および導電性化合物被膜を形成した金属板は、さらに熱処理することにより耐食性が向上する。好ましい熱処理の条件は、非酸化性雰囲気、具体的にはアルゴン、窒素または真空（0.1 Pa 以下）雰囲気下 200～500℃、より好ましくは 250～400℃で、30分～2時間熱処理することである。この熱処理により、前記中間層の金属元素が金属基板に拡散した拡散層が形成される。

次に、本発明による燃料電池の構成例を図1～図5を参照して説明する。ここに用いられた構造図は理解を容易にするためのものであって、各要素の相対的大きさや位置関係は必ずしも正確ではない。

図1は燃料電池積層体の要部を模式的に示す断面図であり、図2はそのアノード側セパレータ板の平面図、図3はカソード側セパレータ板の平面図である。

10は固体電解質膜11、その両面に接合されたアノード12及びカソード13、並びにこれらの周辺部に配されたガスケット14、15などからなる電解質膜－電極接合体（以下、MEAという）を表す。このMEAの外側には、アノード側セパレータ板21及びカソード側セパレータ板31が配置されている。上記のMEA10及びセパレータ板21、31が単セルを構成し、これらの単セルが複数個直列に接続されるように積層されている。この例では、2セル毎にセパレータ板21と31との間に導電性の金属メッシュ16及びガスケット17を挿入して、冷却

水を通すための冷却部を構成してある。

アノード側セパレータ板 2 1 は、図 4 に示す金属板 2 2 と図 5 に示す絶縁性シート 2 7 とを貼り合わせて構成したものである。金属板 2 2 はプレス加工により、アノードに対向する一方の主表面側に突出する複数のリブ 2 3 の配列を中央に有し、左右には流体導入用開口 2 4 a、2 5 a、2 6 a と流体排出用開口 2 4 b、2 5 b、2 6 b を有する。一方、絶縁性シート 2 7 は、シートを打抜き加工して作製したもので、金属板 2 2 のリブ 2 3 を有する面に貼り合わせるることにより、流体導入用開口 2 4 a から流体排出用開口 2 4 b に流体、すなわち燃料ガスを導く溝 2 8 を形成するとともに、アノードに密着させたとき、前記の溝 2 8 から燃料ガスが外部に洩れるのを防止し、さらに開口 2 5 a、2 5 b、開口 2 6 a、2 6 b を通る流体が外部に洩れるのを防止するガスケットとして機能する。

セパレータ板 2 1 の表面に形成される溝 2 8 は、金属板 2 2 のリブ 2 3 とシート 2 7 のリブ片 2 9 との組み合わせにより、リブ 2 3 の両側に形成される 2 つの溝 2 3' が燃料ガスを流通させることになる。

カソード側セパレータ板 3 1 は、図 3 に示すように、プレス加工によりカソードに対向する一方の主表面側に突出する複数のリブ 3 3 の配列を中央に有し、左右には流体導入用開口 3 4 a、3 5 a、3 6 a と流体排出用開口 3 4 b、3 5 b、3 6 b を有する金属板 3 2 と、そのリブ 3 3 を有する面に貼り合わせた絶縁性シート 3 7 とから構成されている。このカソード側セパレータ板 3 1 のカソードに対向する表面には、流体導入用開口 3 6 a から流体導出用開口 3 6 b に流体、すなわち酸化剤ガスを導く溝 3 8 が形成されている。そして、シート 3 7 は、前記の溝 3 8 から酸化剤ガスが外部に洩れるのを防止するとともに、開口 3 4 a、3 5 a、開口 3 4 b、3 5 b を通る流体が外部に洩れるのを防止するガ

スケットとして機能する。

前記の溝 3 8 は、金属板 3 2 のリブ 3 3 とシート 3 7 のリブ片 3 9 との組み合わせにより、リブ 3 3 の間に形成される 4 つの溝 3 3' が酸化剤ガスを流通させることとなる。

このようにプレス加工により複数のリブを形成した金属板と打抜き加工した絶縁性シートとを組み合わせると、セパレータ板を構成すると、絶縁シートの形状を変えるのみで、流体通路用溝の大きさを変えることができる。

上記の例では、カソード側セパレータ板 3 1 の溝 3 8 に連なるガス流路であるリブ 3 3 の間に形成される流路の断面積は、アノード側セパレータ板 2 1 の溝 2 8 に連なるガス流路であるリブ 2 3 の間に形成される流路の断面積の 3 倍である。従って、酸化剤ガスの流速を燃料ガスのそれより大きくすることができる。

上の例では、アノード側導電性セパレータ板およびカソード側導電性セパレータ板は各々独立に作製されたが、アノード側導電性セパレータ板およびカソード側導電性セパレータ板が 1 枚のセパレータ板で構成され、その一方の面側がアノード側導電性セパレータ板であり、他方の面側がカソード側導電性セパレータ板である構成とすることもできる。

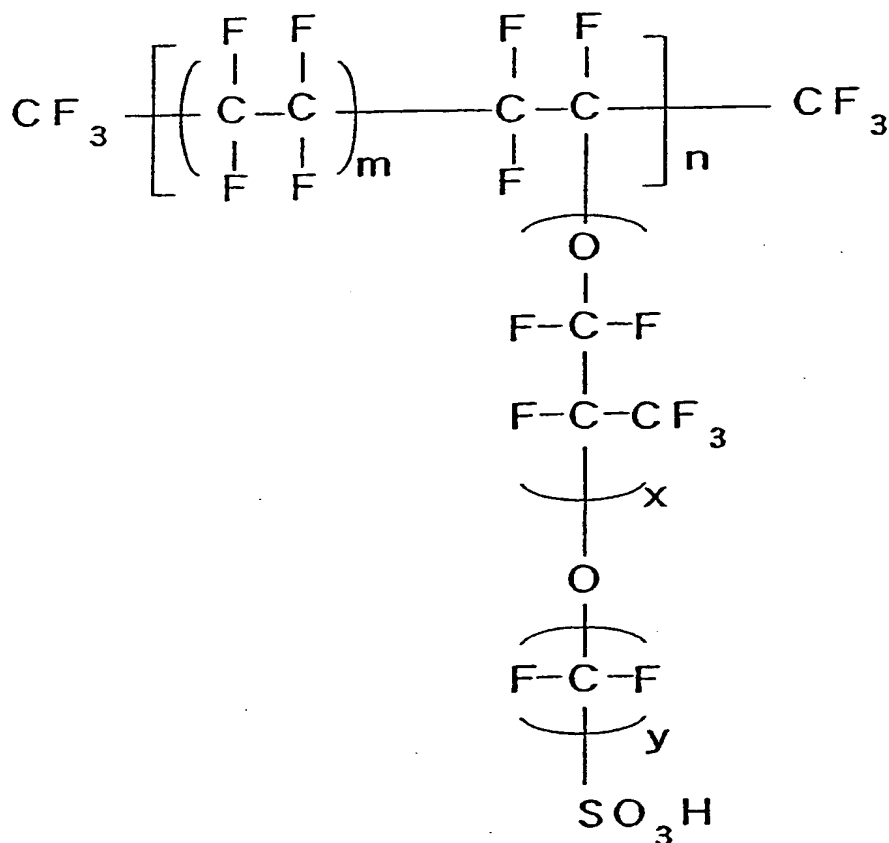
以下、本発明の実施例を図面を参照しながら説明する。

#### 実施例 1

アセチレンブラックに、平均粒径約 30 オングストロームの白金粒子を担持した電極触媒を調製した。この電極触媒のカーボンと白金の重量比は 3 : 1 であった。この触媒粉末のイソプロパノール分散液に、パーフルオロカーボンスルホン酸粉末のエチルアルコール分散液を混合し、ペースト状にした。このペーストをスクリーン印刷法により、厚み

250  $\mu\text{m}$ のカーボン不織布の一方の面に印刷して電極触媒層を形成した。得られた触媒層中に含まれる白金量は0.5  $\text{mg}/\text{cm}^2$ 、パーフルオロカーボンスルホン酸の量は1.2  $\text{mg}/\text{cm}^2$ となるよう調整した。こうしてカーボン不織布に触媒層を形成することにより、同じ構成のアノードおよびカソードを作製した。

これらの電極を、電極より一回り大きい面積を有するプロトン伝導性高分子電解質膜の中心部の両面に、触媒層が電解質膜側に接するようにホットプレスによって接合して、電解質膜－電極接合体(MEA)を作製した。ここで用いたプロトン伝導性高分子電解質膜は、次式において  $x = 1$ 、 $y = 2$ 、 $m = 5 \sim 13.5$ 、 $n \approx 1000$ であるパーフルオロカーボンスルホン酸を25  $\mu\text{m}$ の厚みに薄膜化したものである。また、触媒層に混合されたパーフルオロカーボンスルホン酸は、前記電解質膜と同じ化合物である。



次に、導電性セパレータ板の作製方法を示す。図3に示したように、厚さ0.3mmのステンレス鋼SUS316板の中央部10cm×9cmの領域に、幅約2.8mm、高さ約1mmのリブ23を5.6mmピッチでプレス加工によって形成した。次いで、この表面にAuをrfマグネトロンスパッタ法により、0.2μmの厚さに形成した。成膜条件は、アルゴン雰囲気、rfパワー300W、成膜時間は15分間、基板温度は200℃とした。なお、基板は、前記の製膜前に逆スパッタ法によりクリーニングして表面の自然酸化膜を除去した（以下の実施例においても同じ）。

同様にして各種の貴金属、窒化物および炭化物からなる導電性被膜を形成した。これらの導電性被膜の成膜条件をそれぞれ表1、表2および表3に示す。

表 1

導電性被膜材料	ターゲット	膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	抵抗率 ( $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ )
Au	Au	0.2	2.6
Pt	Pt	0.25	12
Rh	Rh	0.2	14
Pd	Pd	0.25	7.2

成膜条件 基板温度：200℃、Ar = 20 sccm

プラズマパワー：300W、成膜時間：15min

表 2

導電性被膜材料	ターゲット	膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	抵抗率 ( $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ )
TiN	Ti	0.4	20~200
ZrN	Zr	0.4	10~150
TiAlN	Ti+Al	0.4	100~1000
TiZrN	Ti+Zr	0.4	50~800
TaN	Ta	0.35	200~2000
WN	W	0.35	400~10000
CrN	Cr	0.45	3000~10000

成膜条件 基板温度：200℃、Ar/N<sub>2</sub> = 12/8 sccm

プラズマパワー：200W、成膜時間：30min

表 3

導電性被膜材料	ターゲット	膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	抵抗率 ( $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ )
TiC	TiC	0.3	40~400
ZrC	ZrC	0.3	40~400
WC	WC	0.25	20~400
TaC	TaC	0.25	15~200

成膜条件 基板温度：200℃、Ar = 20 sccm

プラズマパワー：200W、成膜時間：30min

続いて、導電性被膜を形成した導電性セパレータ板を熱処理することにより、導電性被膜材料が金属基板に拡散した拡散層を形成した。熱処理は、真空（ $0.1\text{ Pa}$ 以下）雰囲気下において加熱温度 $300^{\circ}\text{C}$ で1時間実施した。熱処理後における抵抗率は、 $5\sim 20\%$ 程度増加したが、燃料電池の特性への大きな影響は見られなかった。しかし、導電性被膜とセパレータ板との間に拡散層を形成することによって、耐薬品性に大きな向上が見られた。実際、ステンレス鋼SUS基板に導電性被膜のみを形成したサンプル、および導電性被膜と拡散層を形成した同じステンレス鋼基板を $80^{\circ}\text{C}$ の $0.01\text{ N}$ 硫酸に500時間浸漬させて腐食状態を目視により観察した結果、導電性被膜だけを形成したサンプルでは、被膜のピンホールに起因すると推定される腐食が認められた。しかしながら、拡散層を設けたサンプルには腐食は認められなかった。以上より、拡散層を形成することにより、拡散層自体の耐薬品性、ならびに導電性被膜のピンホールの減少を図れることがわかる。

上記のようにして導電性被膜を形成し、熱処理により拡散層を形成したステンレス鋼からなる金属基板22に、流体導入用開口24a、25a、26aおよび流体排出用開口24b、25b、26bを設けた。次いで、金属基板の前記導電性被膜を形成した面に、図5に示す厚み約1mmのフェノール樹脂製絶縁性シート27を貼り合わせてアノード側セパレータ板21を作製した。同様に処理した金属基板32に、流体導入用開口34a、35a、36aおよび流体排出用開口34b、35b、36bを形成し、前記導電性被膜を形成した面に、厚み約1mmのフェノール樹脂製絶縁性シート37を貼り合わせてカソード側セパレータ板31を作製した。

これらのセパレータ板を上記のMEAに組み合わせて50セルを積層し、この積層セルを集電板と絶縁板を介し、ステンレス鋼製の端板と締

結ロッドで、 $20\text{ kgf/cm}^2$ の圧力で締結した。この締結圧力は、小さすぎるとガスがリークし、導電性部材同士の接触抵抗も大きくなるので電池性能が低くなる。また、締結圧力が大きすぎると電極が破損したり、セパレータ板が変形したりするので、ガス流通溝の設計に応じて締結圧を変えることが重要である。

比較例として、Auによる導電性被膜を形成したが、拡散層を形成しないセパレータ板を用いた燃料電池を比較例1、表面処理をしないステンレス鋼SUS316板よりなるセパレータ板を用いた燃料電池を比較例2とする。

Auによる導電性被膜を形成し、さらに拡散層を形成したセパレータ板を用いた本実施例の燃料電池と、比較例1および比較例2の燃料電池を、 $85^{\circ}\text{C}$ に保持し、アノード側に $83^{\circ}\text{C}$ の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、またカソード側に $78^{\circ}\text{C}$ の露点となるよう加湿・加温した空気をそれぞれ供給した。その結果、電流を外部に出力しない無負荷時には、 $50\text{ V}$ の開路電圧を示した。

これらの電池を燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度 $0.5\text{ A/cm}^2$ の条件で連続発電試験を行い、出力特性の時間変化を図6に示した。その結果、比較例2の電池は時間の経過と共に出力が低下するのに対し、比較例1および実施例1の電池は、8000時間以上にわたって約 $1000\text{ W}$  ( $22\text{ V}-45\text{ A}$ )の電池出力を維持した。実施例1の電池は、セパレータ板の金属基板が導電性被膜との間に拡散層が形成されていることにより、長駆動時間における出力低下量は減少した。駆動時間3000時間以降、本実施例の電池の出力は、比較例1の電池の出力を上回った。これは、拡散層の形成により、セパレータ板の金属基板の耐腐食性が向上したためと考えられる。

上記と同様の運転条件において、他の導電性被膜を有する金属セパレ



一タ板を用いた電池について、初期（運転開始10時間後）および運転時間が8000時間経過したときの電池出力を調べた。その結果を表4に示す。

表 4

導電性被膜	出力 (W)	
	初期	8000時間後
P t	1 1 7 0	1 1 3 0
R h	1 1 7 0	1 1 2 0
P d	1 1 9 0	1 1 5 0
T i N	1 2 0 0	1 1 5 0
Z r N	1 2 2 0	1 1 7 0
T a N	1 1 0 0	1 0 3 0
T i A l N	1 1 6 0	1 0 8 0
T i C	1 1 7 0	1 1 0 0
Z r C	1 1 8 0	1 1 2 0
W C	1 2 1 0	1 1 6 0
T a C	1 1 9 0	1 1 4 0

本実施例では、ガス流通溝が複数の平行な直線の場合を示したが、ガス導入側開口からガス排出側開口を繋ぐガス流通溝の途中に複数の湾曲部を設けたり、巻き貝の殻のように中央部のマニホールド孔と外側のマニホールド孔とを渦巻き状のガス流通溝で繋ぐ構造など様々な変形が可能である。

また、本実施例においては、セパレータ板の金属基板として、SUS 316を用いたが、他のステンレス鋼やAl、Tiなども用いることができる。

## 実施例 2

本実施例では、セパレータ板の金属基板上に、導電性被膜を島状に形成した。島状の導電性被膜の作製プロセスの断面図を図7に示した。成膜時間を2～6分間とした点を除いては、実施例1と同様の条件で、島状の導電性被膜2を金属基板1上に作製した（図7のa）。続いて、実施例1と同様にして、島状の導電性被膜2の下に拡散層3を形成した（図7のb）。すなわち、真空（0.1 Pa以下）雰囲気下、加熱温度300℃、処理時間20分の条件で熱処理を実施した。前記の島状の個々の導電性被膜2の面積は0.04 mm<sup>2</sup>であり、それら全体の占める割合は面積比で50%である。図7の（b）に示した状態でも導電性セパレータ板として使用可能である。しかしながら、さらに、空気中において250℃で1時間程度熱処理を行った。その結果、島状の導電性被膜に覆われていない部分は、金属酸化物からなる耐食性被膜4が成長した。例えば、Alを金属基板とした場合には酸化アルミニウム被膜が、Tiを金属基板とした場合には酸化チタン被膜がそれぞれ耐食性被膜として成長する。また、ステンレス鋼を金属基板として用いた場合には、硝酸などの化学処理を行うことにより酸化クロム被膜が耐食性被膜として成長する。これらの耐食性被膜によりセパレータ板の金属基板の耐薬品性が大幅に向上する。

上記のように表面処理した金属基板をセパレータ板に用いて実施例1と同様の燃料電池を組み立て、実施例1と同じく、燃料電池を85℃に保持し、アノード側に83℃の露点となるよう加湿・加温した水素ガスを、カソード側に78℃の露点となるよう加湿・加温した空気をそれぞれ供給し、燃料利用率80%、酸素利用率40%、電流密度0.5 A/cm<sup>2</sup>の条件で連続発電試験を行った。金属基板、導電性被膜、および耐食性被膜の種類と、初期（運転開始10時間後）および運転時間が8000時間経過したときの電池出力の関係を表5に示す。拡散層およ

び耐食性被膜を導入することにより、出力電圧の経時変化を小さくすることが可能となった。

表 5

島状導電性被膜	金属セパレータ	耐食性被膜	出力 (W)	
			初期	8 0 0 0 時間後
T i N	SUS316	C r <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 1 0 0	1 0 1 0
	T i	T i O <sub>2</sub>	1 0 8 0	1 0 0 0
Z r N	SUS316	C r <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 1 5 0	1 0 9 0
A u	SUS316	C r <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 1 8 0	1 1 1 0
P t	SUS316	C r <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 1 7 0	1 1 0 0
T i A l N	SUS316	C r <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 0 2 0	9 5 0
	A l	A l <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1 0 0 0	9 3 0

### 実施例 3

セパレータ板の金属基板 1 上に厚さ 0. 0 1 ~ 0. 0 5  $\mu$  m の中間層 5 を r f - マグネトロンスパッタ法により形成し (図 8 の a)、次いで実施例 1 および 2 と同様にして導電性被膜 6 を形成した (図 8 の b)。中間層 5 の作製条件を表 6 に示した。ここに用いた金属基板は、ステンレス鋼 S U S 3 1 6 である。中間層を形成した目的は、金属基板と導電性被膜の密着力を向上させるとともに、ピンホールを防止することにある。中間層は、導電性被膜を構成する金属元素の薄膜により形成した。即ち、T i N 系の導電性被膜では T i を、Z r N 導電性被膜では Z r をそれぞれ中間層として形成した。

表 6

初期層材料	ターゲット	膜厚 ( $\mu\text{m}$ )
T i	T i	0. 0 5
Z r	Z r	0. 0 5
T a	T a	0. 0 5
W	W	0. 0 5
C r	C r	0. 0 5

成膜条件 基板温度：非加熱 $\sim 300^{\circ}\text{C}$ 、 $\text{Ar} = 20\text{sccm}$

プラズマパワー：200W、成膜時間：2 $\sim$ 5min

上記のようにして中間層および導電性被膜を形成した導電性金属セパレータ板を用いて実施例1と同様の燃料電池を組み立て、実施例1と同条件で連続発電試験を行った。初期（運転開始10時間後）および運転時間が8000時間経過したときの電池出力を表7に示した。中間層を導入することにより、出力電圧の経時変化を小さくすることが可能となった。また、上記の中間層および導電性被膜を形成した導電性金属セパレータ板を真空（0.1Pa以下）雰囲気下において $300^{\circ}\text{C}$ で60分間熱処理をして、中間層の金属元素が金属板に拡散した拡散層を形成した場合、運転時間8000時間経過後の出力は、表6より10 $\sim$ 30%向上した。

表 7

導電性被膜	初期層	出力 (W)	
		初期	8000時間後
T i N	T i	1200	1150
Z r N	Z r	1220	1170
T a N	T a	1100	1020
T i A l N	T i	1160	1080
	A l	1130	1040

#### 実施例 4

セパレータ板の金属基板 1 上に、実施例 3 と同様にして、 $r f$  マグネトロンスパッタ法により厚さ  $0.01 \sim 0.05 \mu m$  の中間層 7 を形成した（図 9 の a）。その後、中間層 7 上に、導電性被膜 8-1、8-2、・・・、および 8-n を  $n$  層形成した（図 9 の b）。各導電性被膜中の金属原子の含有率は異ならせた。すなわち、導電性被膜中の金属原子の含有率は、中間層 7 との界面から導電性被膜の表面方向に従って減少している。金属原子の含有比率は、連続的に減少する構成でも問題はない。

導電性被膜中の金属原子の含有率を制御する方法としては、スパッタガス中の  $N_2$  流量比を制御する方法と、 $r f$  パワーを制御する方法を用いた。表 8 にスパッタガス中の  $N_2$  流量比を制御する方法の成膜条件を、表 9 に  $r f$  パワーを制御する方法の成膜条件をそれぞれ示した。スパッタガス中の  $N_2$  分圧を制御する方法では  $n = 6$ 、すなわち 6 層を、 $r f$  パワーを制御する方法では  $n = 4$ 、すなわち 4 層をそれぞれ積層した。なお、成膜パラメーターを連続的に変化させて導電性被膜中の金属原子の含有率を連続的に変化させることも可能であり、本発明において効果的であることは明らかである。

表 8

導電性被膜材料	ターゲット	各層の膜厚( $\mu\text{m}$ )	N <sub>2</sub> 流量比
			N <sub>2</sub> / (N <sub>2</sub> + A r)
T i N	T i	0. 0 7	0, 0. 1, 0. 2, 0. 3, 0. 4, 0. 5
Z r N	Z r	0. 0 7	0, 0. 1, 0. 2, 0. 3, 0. 4, 0. 5
T i A l N	T i + A l	0. 0 7	0, 0. 1, 0. 2, 0. 3, 0. 4, 0. 5
T i Z r N	T i + Z r	0. 0 7	0, 0. 1, 0. 2, 0. 3, 0. 4, 0. 5
T a N	T a	0. 0 7	0, 0. 1, 0. 2, 0. 3, 0. 4, 0. 5
W N	W	0. 0 7	0, 0. 1, 0. 2, 0. 3, 0. 4, 0. 5
C r N	C r	0. 0 7	0. 0. 1, 0. 2, 0. 3, 0. 4, 0. 5

成膜条件 基板温度：非加熱～300℃、A r + N<sub>2</sub> = 20 sccm  
 プラスパワー：200W、成膜時間：6min

表 9

導電性被膜材料	ターゲット	各層の膜厚( $\mu\text{m}$ )	rf-パワー(W)
T i N	T i	0. 1	50, 100, 200, 300
Z r N	Z r	0. 1	50, 100, 200, 300
T i A l N	T i + A l	0. 1	50, 100, 200, 300
T i Z r N	T i + Z r	0. 1	50, 100, 200, 300
T a N	T a	0. 1	50, 100, 200, 300
W N	W	0. 1	50, 100, 200, 300
C r N	C r	0. 1	50, 100, 200, 300

成膜条件 基板温度：非加熱～300℃、A r / N<sub>2</sub> = 18 / 2 sccm  
 成膜時間：8min

導電性被膜中の金属元素の含有率に傾斜を設けた目的は、金属セパレータ板と導電性被膜の密着力を向上させるとともに、被膜の残留応力を緩和し、さらにピンホールを防止することにある。その結果、燃料電池の出力の安定性が大きく向上した。中間層としては、導電性被膜を構成する金属元素の薄膜を用いた。即ち、T i N系の導電性被膜ではT i を、

ZrN系導電性被膜ではZrをそれぞれ中間層として形成した。

中間層を形成し、かつ導電性被膜の金属元素の含有率に傾斜を設けた導電性金属セパレータ板を用いて実施例1と同様に燃料電池を組み立て、実施例1と同じ条件で連続発電試験を行った。初期（運転開始10時間後）および運転時間が8000時間経過したときの電池出力を表10に示した。中間層を導入し、かつ導電性被膜の金属元素の含有率に傾斜を設ける構成により、出力電圧の経時変化を小さくすることが可能となった。また、上記の中間層および導電性被膜を形成した導電性金属セパレータ板を真空（0.1Pa）雰囲気下において300℃で60分間熱処理をして、中間層の金属元素が金属板に拡散した拡散層を形成した場合、運転時間8000時間経過後の出力は、表10より10～30%向上した。

表 1 0

初期層	導電性被膜	制御法	出力 (W)	
			初期	8000時間後
Ti	TiN	N <sub>2</sub> 流量比	1150	1100
		rfパワー	1120	1050
Zr	ZrN	N <sub>2</sub> 流量比	1200	1160
		rfパワー	1180	1130
Ti	TiAlN	N <sub>2</sub> 流量比	1110	1060
		rfパワー	1090	1020
Al	TiAlN	N <sub>2</sub> 流量比	1090	1040
		rfパワー	1070	1000

## 実施例 5

ステンレス鋼 SUS 316 L を基板とし、TiN、TiAlN および TiC からなる導電性被膜を形成するほかは実施例 1 と同様にして 3 種の導電性セパレータ板を作製した。これら導電性被膜の形成条件は次のとおりである。それぞれ TiN、TiAlN および TiC をターゲットとし、 $4 \times 10^{-2}$  Torr のアルゴン雰囲気中において、基板温度 500℃、300℃ および 500℃、スパッタ電力 400 W、300 W および 400 W で、rf-スパッタ法により製膜速度 1.5  $\mu\text{m}/\text{時}$ 、1.0  $\mu\text{m}/\text{時}$  および 1.5  $\mu\text{m}/\text{時}$  にて厚さ 1  $\mu\text{m}$ 、1.2  $\mu\text{m}$  および 1  $\mu\text{m}$  の被膜を形成した。

一方、電極は次のようにして作製した。まず、厚さ 400  $\mu\text{m}$  のカーボン不織布にフッ素樹脂の水性デスパーションを含浸し、400℃で 30 分間熱処理することにより撥水性を付与した。カーボン粉末に白金触媒を重量比 1 : 1 の割合で担持させ、そのスラリーを前記のカーボン不織布の片面に塗工して触媒層を形成した。上記の他は実施例 1 と同様にして 50 セルを積層した燃料電池を組み立てた。そして、実施例 1 と同じ条件で初期および運転時間が 8000 時間を経過したときの出力を調べた。その結果を表 11 に示す。表 4 の結果と比べると劣るが、出力の低下はかなり低減されている。金属基板に侵入型化合物のみの被膜を形成する場合、その厚みは 120 オングストロームから 1  $\mu\text{m}$  の範囲が適当である。



表 1 1

導電性被膜	出力 (W)	
	初期	8 0 0 0 時間後
T i N	1 2 2 0	1 1 5 0
T i A l N	1 1 8 0	1 0 5 0
T i C	1 0 5 0	9 8 0

#### 産業上の利用の可能性

以上のように本発明によれば、セパレータ板として従来のカーボン板の切削工法に替わり、ステンレス鋼などの金属材料を切削加工しないで用いることができるので、量産時に大幅なコスト低減が図れる。また、セパレータ板をいっそう薄くできるので、積層電池のコンパクト化に寄与する。さらに、セパレータ板の金属基板と導電性被膜の間に中間層を形成することにより、金属基板の耐食性が向上するために、燃料電池の長期駆動における出力安定性を向上することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソード、前記アノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側導電性セパレータ板、および前記カソードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側導電性セパレータ板を具備し、前記アノード側およびカソード側導電性セパレータ板は、金属板およびそのアノードまたはカソードに面する表面を部分的にまたは全面を被覆する耐酸化性の導電性被膜からなり、前記金属板と導電性被膜との界面部分に前記導電性被膜材料の拡散した拡散層を有する高分子電解質型燃料電池。

2. 前記導電性被膜が貴金属からなる請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池。

3. 前記導電性被膜が、侵入型化合物からなる請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池。

4. 前記侵入型化合物が、Ti、Cr、Zr、Al、Ta および W からなる群より選ばれる元素の窒化物または炭化物である請求項 3 記載の高分子電解質型燃料電池。

5. 前記金属板のアノードまたはカソードに面する表面が導電性被膜により島状に被覆され、前記金属板の導電性被膜が形成されていない部分には、耐食性被膜が形成されている請求項 1 記載の高分子電解質型燃料電池。

6. 高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソード、前記アノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側導電性セパレータ板、および前記カソードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側導電性セパレータ板を具備し、前記アノード側およびカソード側導電性セパレータ板は、金属板およびそのアノードまた

はカソードに面する表面を被覆する耐酸化性の導電性化合物被膜からなり、前記金属板と導電性化合物被膜との界面部分に前記導電性化合物を構成する金属元素からなる中間層を有する高分子電解質型燃料電池。

7. 前記導電性化合物が、侵入型化合物からなる請求項6記載の高分子電解質型燃料電池。

8. 前記侵入型化合物が、Ti、Cr、Zr、Al、TaおよびWからなる群より選ばれる元素の窒化物または炭化物である請求項7記載の高分子電解質型燃料電池。

9. 前記導電性化合物被膜は、前記中間層との界面から導電性化合物被膜の表面にかけて導電性化合物被膜を形成する元素の構成比が変化している請求項6に記載の高分子電解質型燃料電池。

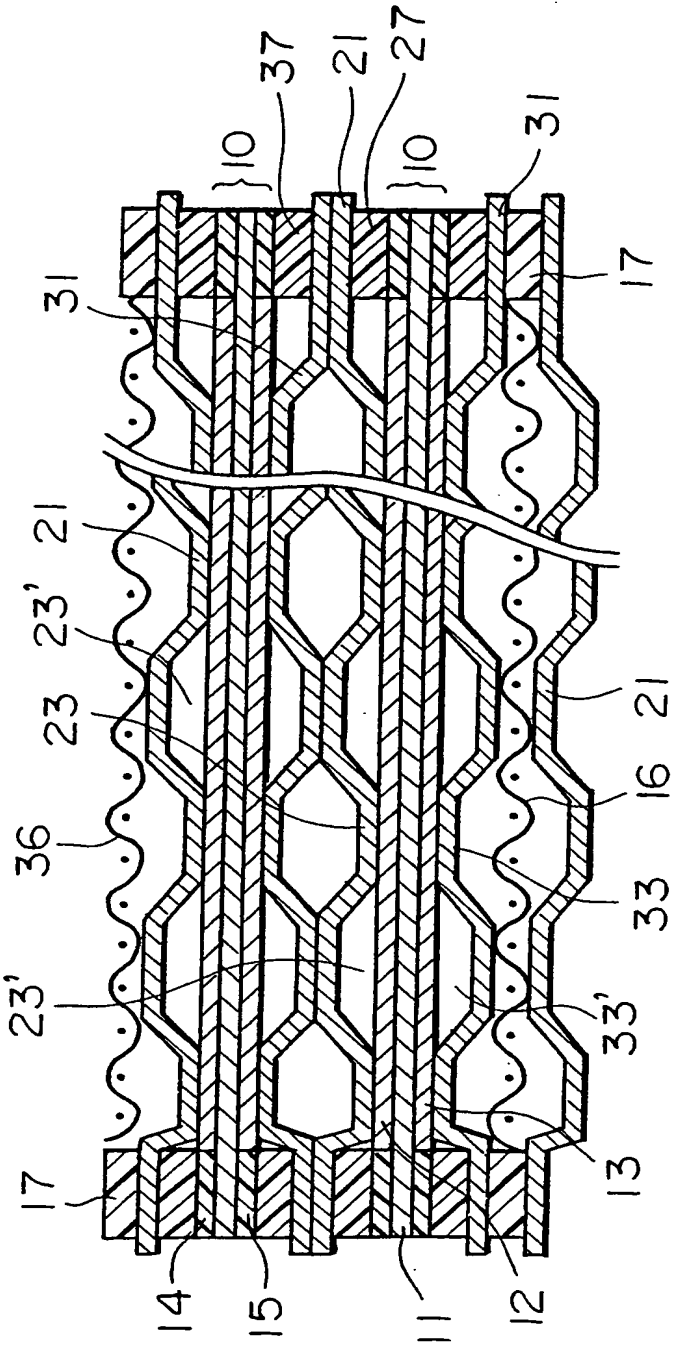
10. 前記中間層と金属板との界面に、前記中間層の金属元素が拡散した拡散層を有する請求項6記載の高分子電解質型燃料電池。

11. 高分子電解質膜、前記高分子電解質膜を挟むアノードおよびカソード、前記アノードに燃料ガスを供給するガス流路を有するアノード側導電性セパレータ板、および前記カソードに酸化剤ガスを供給するガス流路を有するカソード側導電性セパレータ板を具備し、前記アノード側およびカソード側導電性セパレータ板は、金属板およびそのアノードまたはカソードに面する表面を部分的にまたは全面を被覆する耐酸化性の導電性被膜からなり、前記導電性被膜が侵入型化合物からなる高分子電解質型燃料電池。

12. 前記アノード側導電性セパレータ板が、燃料ガスを導くための溝またはリブを前記アノードに面する表面に有する金属板と、前記溝またはリブと協同して燃料ガスをその供給側から排出側に導くガス流路を前記金属板表面に形成し、かつ燃料ガスが前記ガス流路から外部に漏れるのを防止するガスケットとして働く弾性を有する絶縁性シートからなり、

前記カソード側導電性セパレータ板が、酸化剤ガスを導くための溝またはリブを前記カソードに面する表面に有する金属板と、前記溝またはリブと協同して酸化剤ガスをその供給側から排出側に導くガス流路を前記金属板表面に形成し、かつ酸化剤ガスが前記ガス流路から外部に漏れるのを防止するガスケットとして働く弾性を有する絶縁性シートからなる請求項 1、6 または 11 記載の高分子電解質型燃料電池。

FIG. 1



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

FIG.2

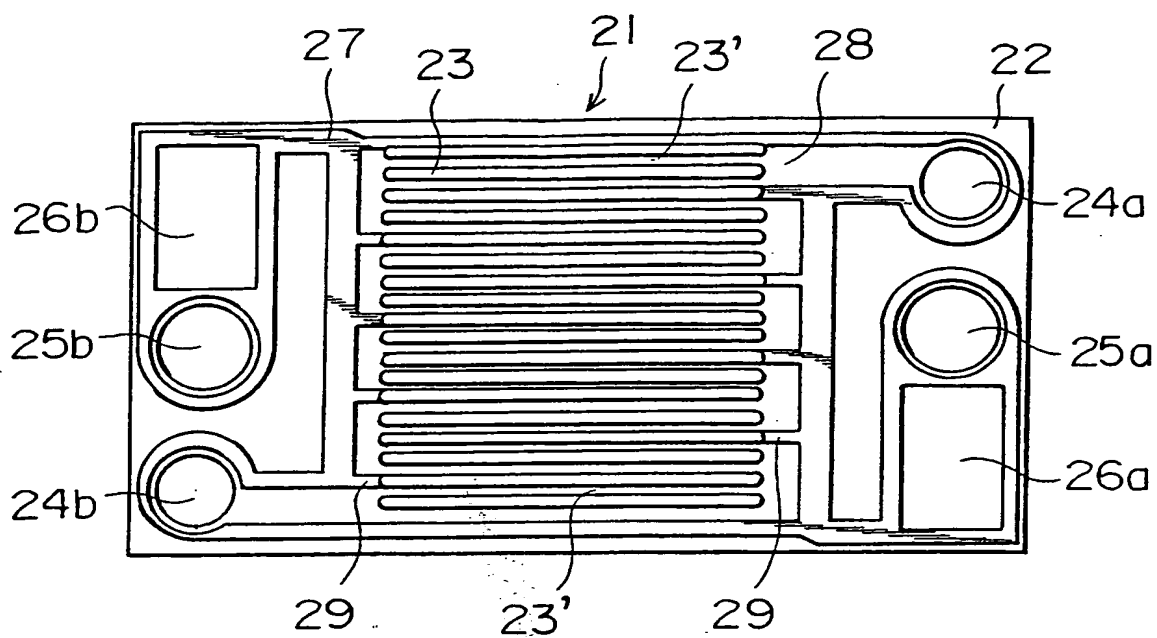
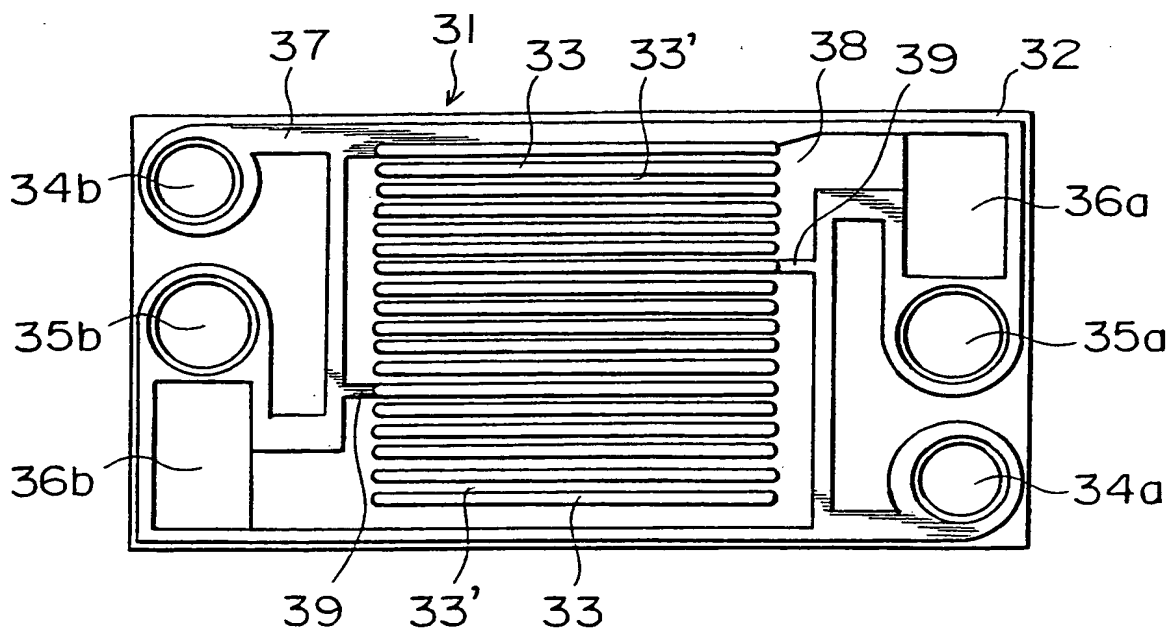


FIG.3



THIS PAGE BLANK (1970)



FIG.4

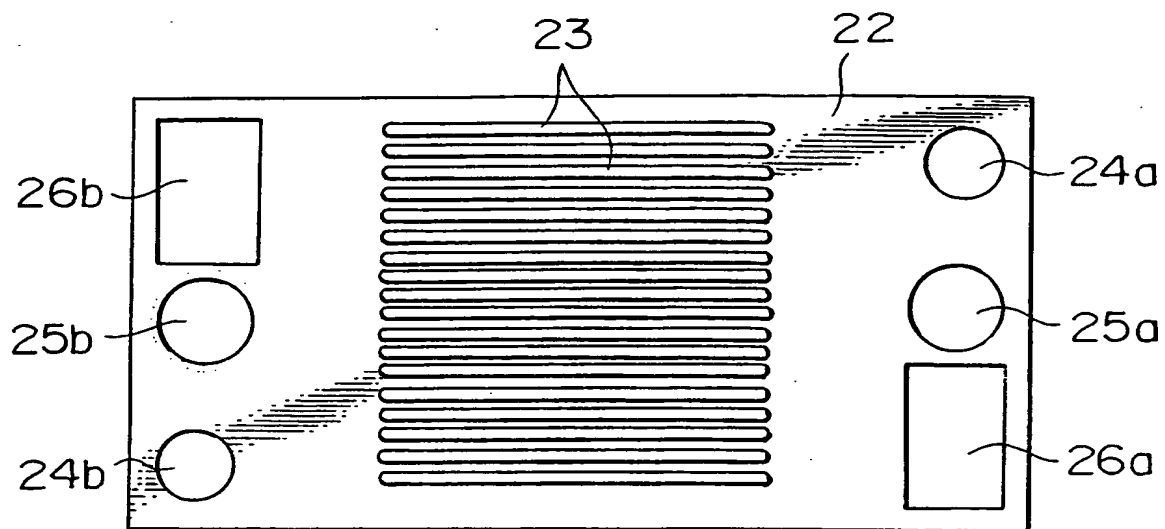
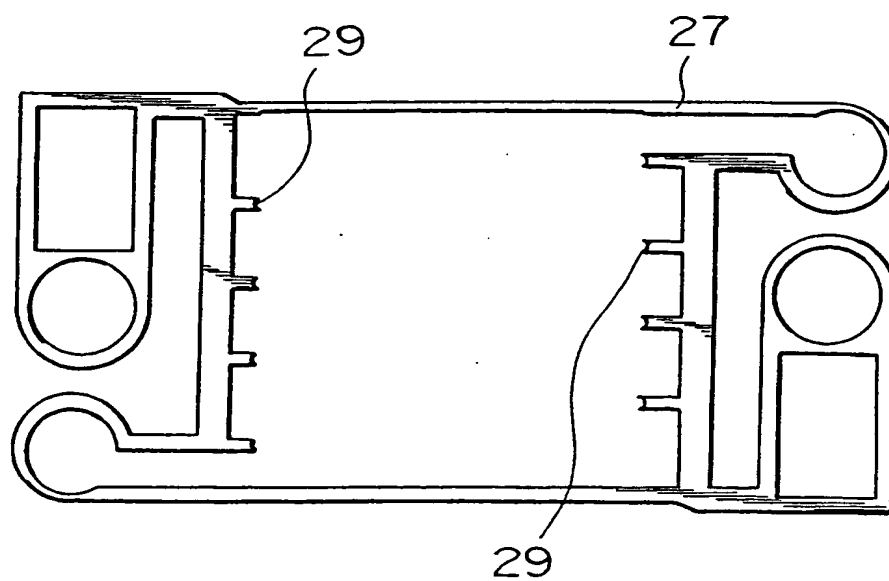
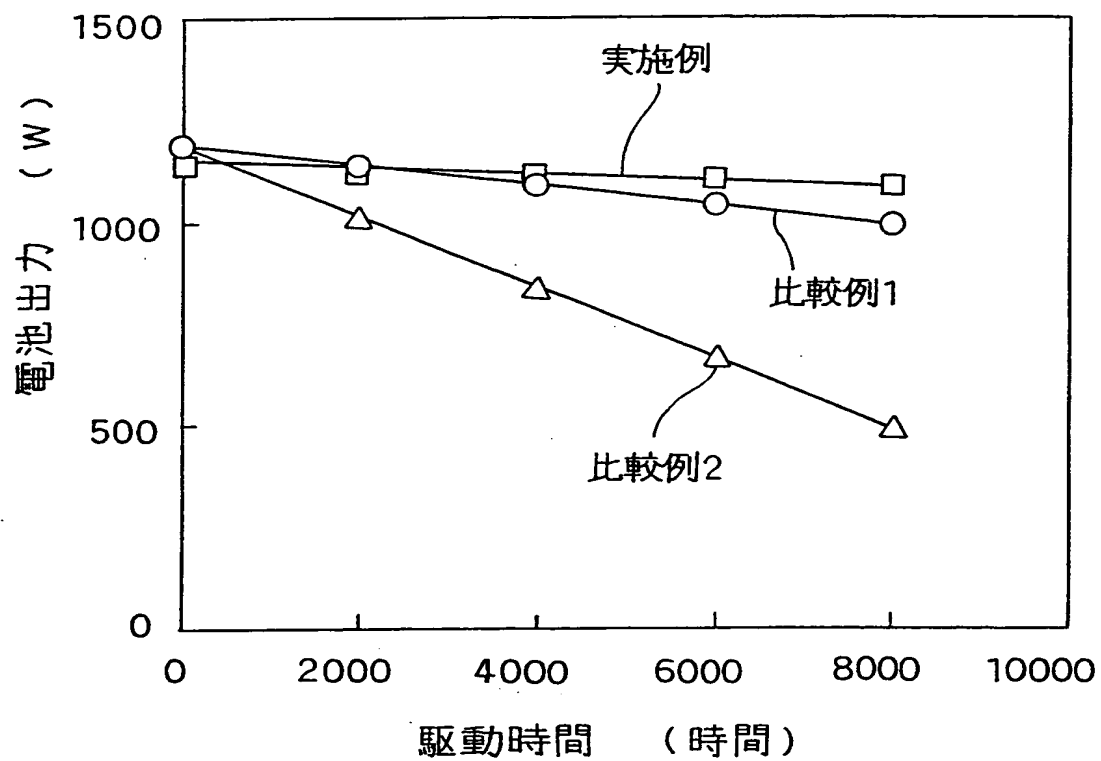


FIG.5



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

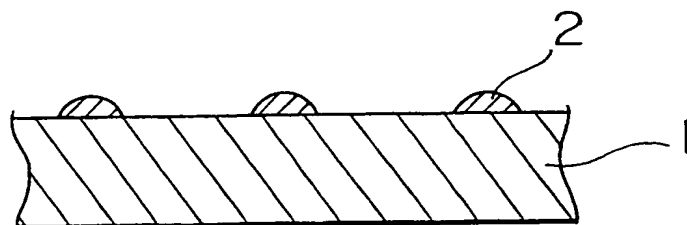
FIG. 6



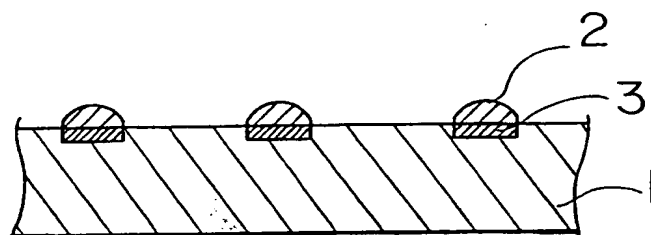
THIS PAGE BLANK (USPTO)

FIG. 7

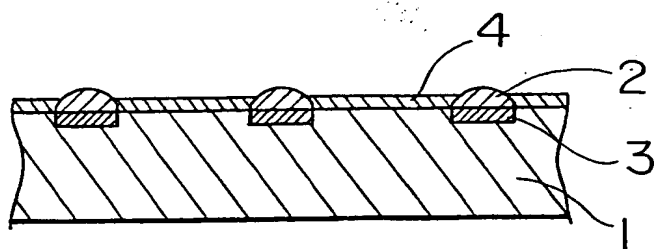
a)



b)

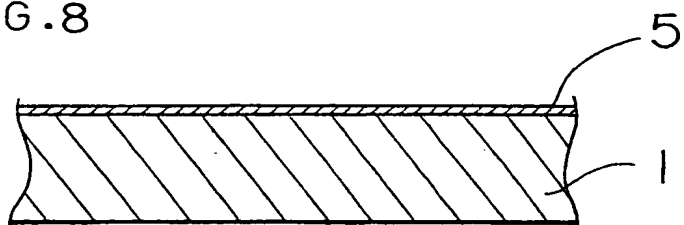


c)

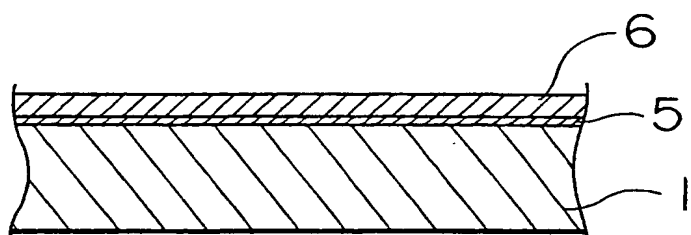


**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

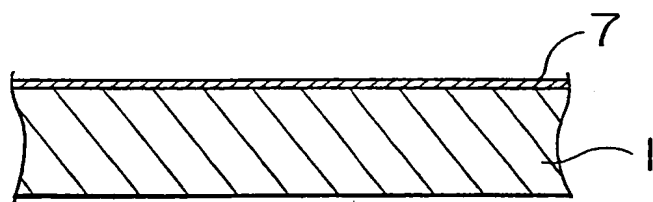
d) FIG. 8



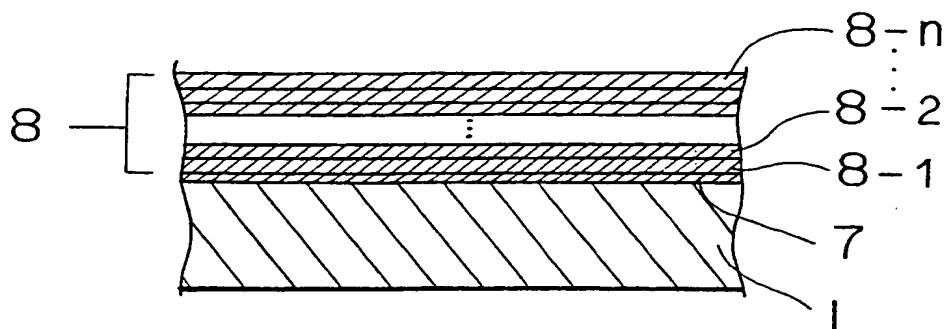
c)



a) FIG. 9



b)



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06073

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01B8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/02, H01B8/10, C23C14/58

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JOIS  
DIALOG (WPI/L)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP, 11-162479, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 18 June, 1999 (18.06.99), Claims; Par. Nos. [0001] to [0031] (Family: none)	11 1,3-4,6-10,12 5
X Y A	JP, 11-219713, A (Nisshin Steel Co., Ltd.), 10 August, 1999 (10.08.99), Claims; Par. Nos. [0001] to [0023] (Family: none)	11 1,3-4,6-10,12 5
Y A	JP, 9-298064, A (Fuji Electric Co., Ltd.), 18 November, 1997 (18.11.97), Claims; Par. Nos. [0001] to [0020], [0024]; Figs. 1, 4 to 7 (Family: none)	1-2,12 5
Y	JP, 5-25635, A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), 02 February, 1993 (02.02.93), Par. Nos. [0002] to [0028]; Fig. 1 (Family: none)	1,3-4,6-10,12
Y	JP, 5-25636, A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), 02 February, 1993 (02.02.93), Par. Nos. [0002] to [0030]; Fig. 1 (Family: none)	1,3-4,6-10,12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
05 December, 2000 (05.12.00)

Date of mailing of the international search report  
12 December, 2000 (12.12.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06073

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 10-237643, A (Sumitomo Osaka Cement Co., Ltd.), 08 September, 1998 (08.09.98), Par. Nos. [0002] to [0025] (Family: none)	1~2, 12
Y	JP, 8-311651, A (Nisshin Steel Co., Ltd.), 26 November, 1996 (26.11.96), Par. Nos. [0002] to [0019] (Family: none)	9
Y	JP, 10-55813, A (AISIN SEIKI CO., LTD.), 24 February, 1998 (24.02.98), Par. Nos. [0001] to [0015]; Figs. 1 to 6 (Family: none)	12
EA	JP, 2000-323151, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 24 November, 2000 (24.11.00) (Family: none)	5

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/06073

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> H01M 8/02, H01B8/10

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.<sup>7</sup> H01M 8/02, H01B8/10, C23C14/58

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS  
 DIALOG (WPI/L)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y A	JP, 11-162479, A (旭硝子株式会社), 18. 6 月. 1999 (18. 06. 99), 特許請求の範囲、及び、【00 01】～【0031】 (ファミリーなし)	11 1, 3～4, 6 ～10, 12 5
X Y A	JP, 11-219713, A (日新製鋼株式会社), 10. 8 月. 1999 (10. 08. 99), 特許請求の範囲、及び、【00 01】～【0023】 (ファミリーなし)	11 1, 3～4, 6 ～10, 12 5

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

05. 12. 00

国際調査報告の発送日

12.12.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進

4X

8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	J P, 9-298064, A (富士電機株式会社), 18. 11 月. 1997 (18. 11. 97), 特許請求の範囲、【0001】～ 【0020】、【0024】、【図1】、及び、【図4】～【図7】 (ファ ミリーなし)	1～2, 12 5
Y	J P, 5-25635, A (住友金属工業株式会社), 2. 2 月. 1993 (02. 02. 93), 【0002】～【0028】、及び、 【図1】 (ファミリーなし)	1, 3～4, 6 ～10, 12
Y	J P, 5-25636, A (住友金属工業株式会社), 2. 2 月. 1993 (02. 02. 93), 【0002】～【0030】、及び、 【図1】 (ファミリーなし)	1, 3～4, 6 ～10, 12
Y	J P, 10-237643, A (住友大阪セメント株式会社), 8. 9月. 1998 (08. 09. 98), 【0002】～【0025】 (ファミリーなし)	1～2, 12
Y	J P, 8-311651, A (日新製鋼株式会社), 26. 11 月. 1996 (26. 11. 96), 【0002】～【0019】 (ファミ リーなし)	9
Y	J P, 10-55813, A (アイシン精機株式会社), 24. 2月. 1998 (24. 02. 98), 【0001】～【0015】、及 び、【図1】～【図6】 (ファミリーなし)	12
E A	J P, 2000-323151, A (松下電器産業株式会社), 24. 11月. 2000 (24. 11. 00) (ファミリーなし)	5